

博士論文の要旨及び審査結果の要旨

氏名 角田 竜馬
 学位 博士 (理学)
 学位記番号 新大院博 (理) 第 438 号
 学位授与の日付 平成 31 年 3 月 25 日
 学位授与の要件 学位規則第 4 条第 1 項該当
 博士論文名 極限環境下における CeAl の電子状態と逐次相転移

論文審査委員 主査 教授・摂待 力生
 副査 教授・武田 直也
 副査 教授・瀧本 哲也
 副査 教授・大野 義章
 副査 准教授・石川 文洋
 副査 准教授・根本 祐一

博士論文の要旨

磁性と超伝導の研究は、強相関電子系の興味深い物理が発現する舞台として、物性物理学の重要なテーマとなっている。特に、磁気秩序を示す物質に圧力や元素置換、外部磁場を加えると、磁気秩序が消失する量子臨界点 (QCP) において、磁氣的な揺らぎを媒介とした非従来型の超伝導や、通常の金属的な振る舞いとは異なる非フェルミ液体的挙動が観測されるため、様々な磁性体、特に 4f 電子を有するセリウム化合物での研究が盛んに進められてきた。その中でも Ce-Al 系化合物には、通常の金属における伝導電子の 1600 倍も重い電子を有する CeAl₃ や、2.7GPa の圧力で QCP が現れる反強磁性体 CeAl₂ がある。その他、Ce₃Al₁₁ や Ce₃Al など Ce-Al 化合物では、圧力・磁場を用いた QCP の探索が行われている。そのような状況の中、ごく最近インド・タタ基礎科学研究所の A. Thamizhavel 博士のグループが、CeAl の単結晶育成に成功した。申請者は、同博士と国際共同研究を進め、CeAl の QCP 探索と QCP 近傍の物性研究を行なった。

本論文で研究対象とした CeAl は斜方晶の結晶構造を持ち、反強磁性転移温度 $T_{N1}=10$ K、電子比熱係数 $\gamma=52$ mJ/(K²・mol) をもつ反強磁性体である。先行研究では、磁化の大きな異方性や、多段メタ磁性など特徴的な磁性を示すことが報告されていた。本論文では CeAl の QCP 近傍での物性を調べることで、Ce 化合物の QCP 近傍での新たな物性の探索を行うことを目的とした。そのため、8GPa までの高圧力、17T までの高磁場、20mK 以下までの極低温での複合極限環境での物性測定を行った。圧力発生にはピストンシリンダーセル (PCC)、ブリッジマンアンビルセル (BAC)、キュービックアンビルセルを用いた、キュービックアンビルセルは定荷重型 (CAC) とクランプ型 (PCAC) の二種類を用いた。比熱は交流法、磁化率はピックアップコイルを用いた交流磁化法、電気抵抗・磁気抵抗は交流四端子法を用いて測定を行った。その結果、CeAl の常圧での反強磁性転移温度 $T_{N1}(T_N)$ は加圧に伴い上昇し 2GPa より高圧では三つの反強磁性相転移温度 (T_{N2} , T_{N3} , T_{N4}) に分裂する振る舞いを観測した。 T_{N3} , T_{N4} は加圧に伴い増加し、6 GPa で極大をとり、 $P^*=7.5$ GPa で消失する。各圧力における低温での電気抵抗の振る舞いを解析した結果、電気抵抗の温度の二乗の係数と残留抵抗が 7 GPa 近傍で最大となる振る舞いを観測した。

このような振る舞いは、他の Ce 化合物の反強磁性 QCP 近傍で見られる振る舞いであり、CeAl の局在 4f 電子による反強磁性 QCP が P^* 近傍に存在することを示唆する。4.5GPa より高圧では圧力誘起相(PIP) が観測され、PIP は P^* 近傍で発達する振る舞いを示す。PIP の起源として不純物効果、圧力誘起超伝導、圧力誘起磁気秩序を議論した。

また、常圧、及び 1.3 GPa において横磁気抵抗測定を行い、常圧の横磁気抵抗は H_{e1} 、および H_{e2} の二つの磁場で磁気構造の変化による磁気異常が観測され、 H_{e2} での異常はヒステリシスを伴う。1.3 GPa での横磁気抵抗では異常を示す磁場は高磁場側へと移動し、6~10 T の間の磁場で 3 つ以上のヒステリシスを伴う一次転移的な磁気異常が観測された。また、ヒステリシスは昇温に伴い小さくなっていき、一次転移から二次転移的な振る舞いへと変化していくことを見出した。

本研究から得られた結果から、CeAl の PIP は遍歴した 4f 電子が寄与する磁性であり、反強磁性相内で遍歴的な電子状態の 4f 電子が出現している可能性が示唆された。そこから、CeAl が加圧によって遍歴反強磁性が誘起される稀な Ce 化合物である可能性を示した。また、CeAl が圧力・磁場下でも複雑な逐次相転移を持つことを示す物質であることが明らかにした。

審査結果の要旨

本博士論文では、反強磁性体の量子臨界点近傍での電子状態や磁氣的性質、非従来型超伝導の探索を目的として、希土類化合物反強磁性体 CeAl に対し、様々な圧力発生装置を駆使して、高圧下・磁場下の交流比熱、磁化率、電気抵抗測定を行い、温度圧力相図を作成した。Ce と Al による化合物としては、典型的重い電子系物質 $CeAl_3$ や温度圧力相図がよく調べられている反強磁性体 $CeAl_2$ があるが、CeAl については、まったく圧力下の物性が明らかにされてこなかった物質である。本研究では、様々な圧力発生装置と高圧下の物性測定技術を駆使して、圧力下の電子状態、特に 4f 電子の性質について研究した。その結果、常圧あるいは 4GPa 以下の低圧では、局在的な性質をもった 4f 電子が反強磁性を担い、加圧とともに、いくつかの磁気秩序相が現れてくることを明らかにした。さらに圧力をかけると、6 GPa から急激に反強磁性秩序が抑えられ、7GPa で反強磁性相が消失し、量子臨界的な振る舞いを示すことを明らかにした。しかしながら、この反強磁性相内で、4.5GPa 付近から 2K 以下の低温で、局在電子による反強磁性相とは別の相が出現することを発見した。この相は、局在 4f 電子による反強磁性相が消失する 7GPa 以上の圧力でも存在することから、圧力誘起超伝導の可能性や、他の不純物の可能性などを検討した上で、この圧力誘起相は、量子臨界点近傍で 4f 電子の遍歴性が発達することによる磁気秩序相であり、高温側の磁気秩序相とは、4f 電子の性質が異なると考察した。このような相は、これまで他の物質系では、元素置換やキャリア数の変化により見出されていたが、相としては分離していた。このような相転移が圧力変化により見出された例はなく、また温度変化でその磁気秩序を担う電子の局在性・遍歴性が現れたとすると、これも初めての例となる。この結果は、今後圧力下の中性子散乱実験やフェルミ面観測により、検証される必要があるが、強相関電子系の量子臨界点の物理に新たな展開をもたらす成果である。

よって、本論文は博士（理学）として十分であると認定した。